

**Modified ethylene-propylene rubber composition and high-impact resin composition**

**Patent number:** DE3628362  
**Publication date:** 1987-02-26  
**Inventor:** GAKU MORIO (JP); KIMBARA HIDENORI (JP)  
**Applicant:** MITSUBISHI GAS CHEMICAL CO (JP)  
**Classification:**  
- **international:** C08L23/16; C08K5/29; C08K5/34; C08L23/00; C08L67/00; C08J3/24; C09J3/14  
- **european:** C08L23/02, C08K5/315, C08L67/00  
**Application number:** DE19863628362 19860821  
**Priority number(s):** JP19860025757 19860210; JP19860025758 19860210; JP19860025759 19860210; JP19850183409 19850821; JP19850273385 19851206; JP19850273386 19851206

**Abstract of DE3628362**

The invention relates firstly to cyanate-modified ethylene-propylene rubber compositions having improved mechanical properties, low thermal degradation and improved adhesive properties. These compositions can be used as moulding materials, adhesives and adhesive films. The invention also relates to thermoplastic resins comprising ethylene-propylene rubber and cyanates. These resins have improved impact strength, improved mechanical properties and reduced thermal degradation.

---

Data supplied from the **esp@cenet** database - Worldwide

THIS PAGE BLANK (USPTO)



DEUTSCHES

PATENTAMT

# Offenlegungsschrift DE 3628362 A1

2002/G-002

51 Int. Cl. 4:

C08L 23/16

C 08 K 5/29

C 08 K 5/34

C 08 L 23/00

C 08 L 67/00

21 Aktenzeichen: P 36 28 362.2

22 Anmeldetag: 21. 8. 86

43 Offenlegungstag: 26. 2. 87

Behördeneigentum

DE 3628362 A1

51 // C08J 3/24, C09J 3/14

30 Unionspriorität: 32 33 31

21.08.85 JP P 183409/85	06.12.85 JP P 273385/85
06.12.85 JP P 273386/85	10.02.86 JP P 25757/86
10.02.86 JP P 25758/86	10.02.86 JP P 25759/86

71 Anmelder:

Mitsubishi Gas Chemical Co., Inc., Tokio/Tokyo, JP

74 Vertreter:

Henkel, G., Dr.phil.; Feiler, L., Dr.rer.nat.; Hänzel, W.,  
Dipl.-Ing.; Kottmann, D., Dipl.-Ing, Pat.-Anw., 8000  
München

72 Erfinder:

Gaku, Morio, Saitama, JP; Kimbara, Hidenori,  
Tokio/Tokyo, JP

Prüfungsantrag gem. § 44 PatG ist gestellt

54 Modifizierte Ethylen-Propylen-Kautschukmasse und hochschlagfeste Harzmasse

Es werden zum einen mit Cyanatesterbindung modifizierte Ethylen-Propylen-Kautschukmassen mit verbesserten mechanischen Eigenschaften, geringerem thermischem Abbau und verbesserten Klebeeigenschaften offenbart. Diese Massen können als Formprodukte, Klebstoffe und Klebefolien benutzt werden.

Zum anderen werden thermoplastische Harze aus Ethylen-Propylen-Kautschuk und Cyanatesterbindung offenbart. Diese Harze haben eine verbesserte Schlagfestigkeit, verbesserte mechanische Eigenschaften und einen verminderten thermischen Abbau.

DE 3628362 A1

## Patentansprüche

1. Ethylen-Propylen-Kautschukmasse, die modifiziert ist durch Zugabe von 0,1 bis 20 Gew.-%, bezogen auf das Gewicht der Masse, einer Cyanatester Verbindung mit mindestens einer Cyanatgruppe im Molekül zu einem Ethylen-Propylen-Kautschuk.
2. Modifizierte Kautschukmasse nach Anspruch 1, **dadurch gekennzeichnet**, daß die Masse weiter mindestens einen Comodifikator aus
  - (a) einem Katalysator zum Vernetzen des Ethylen-Propylen-Kautschuks,
  - (b) einem Katalysator zum Härten der Cyanatester Verbindung und
  - (c) einer monofunktionellen oder polyfunktionellen Maleimid-Verbindung in einer Menge von 0,1 bis 5 Gew.-%, bezogen auf das Gewicht der Kautschukmasse, enthält.
3. Modifizierte Kautschukmasse nach Anspruch 1, **dadurch gekennzeichnet**, daß sie weiter ein Verstärkungsmaterial enthält.
4. Schlagbeständige thermoplastische Harzmasse aus
  - (A) 95 bis 70 Gew.-% eines thermoplastischen Harzes (A) und
  - (B) 5 bis 30 Gew.-% eines die Schlagfestigkeit modifizierenden Zusatzes, ausgewählt aus der Gruppe bestehend aus
    - (i) einer Mischung von 95 bis 70 Gew.-% eines Ethylen-Propylen-Kautschuks (a) und 5 bis 30 Gew.-% einer Cyanatester Verbindung (b) und
    - (ii) einem vorläufigen Reaktionsprodukt aus 95 bis 70 Gew.-% Ethylen-Propylen-Kautschuk (a) und 5 bis 30 Gew.-% der Cyanatester Verbindung (b).
5. Harzmasse nach Anspruch 4, **dadurch gekennzeichnet**, daß das thermoplastische Harz (A) ausgewählt ist aus einem Polyolefin- oder Polyesterharz.
6. Harzmasse nach Anspruch 4, **dadurch gekennzeichnet**, daß der die Schlagfestigkeit modifizierende Zusatz (B) das vorläufige Reaktionsprodukt von (a) und (b) ist.
7. Harzmasse nach irgendeinem der Ansprüche 4 bis 6, **dadurch gekennzeichnet**, daß die Masse weiter mindestens einen Comodifikator (c) aus
  - (i) einem Katalysator zum Vernetzen des Kautschuks (a),
  - (ii) einem Katalysator zum Härten der Cyanatester Verbindung (b) und
  - (iii) eine polyfunktionelle oder monofunktionelle Maleimidverbindung in einer Menge von weniger als 30 Gew.-%, bezogen auf das Gewicht der Cyanatestermasse, enthält.
8. Harzmasse nach Anspruch 4, **dadurch gekennzeichnet**, daß die Masse weiter ein Verstärkungsmaterial enthält.

## Beschreibung

Die vorliegende Erfindung bezieht sich zum einen auf eine Ethylen-Propylen-Kautschukmasse, die durch Einarbeiten einer Cyanatester Verbindung modifiziert ist. Die Masse hat verbesserte mechanische Eigenschaften, Beständigkeit gegenüber thermischem Abbau sowie Klebeeigenschaften. Die Masse kann vorteilhaft als Formharzprodukte, als Klebstoffe in Form anhaftender Filme und als Lösung eingesetzt werden.

Die vorliegende Erfindung bezieht sich zum anderen auf ein thermoplastisches Harz, das Ethylen-Propylen-Kautschuk enthält, in den ein Cyanatester eingearbeitet worden ist, wodurch die hohe Schlagfestigkeit, die mechanischen Eigenschaften und die Beständigkeit gegenüber thermischem Abbau des thermoplastischen Harzes verbessert werden.

Ethylen-Propylen-Kautschuk hat eine ausgezeichnete Beständigkeit gegenüber UV-Strahlen und wird auf vielen industriellen Gebieten benutzt. Der Kautschuk hat jedoch nur geringe Haftungseigenschaften und wird in Gegenwart eines anorganischen Füllstoffes, einer Metallkomponente, eines Pigmentes oder eines Metalloxyds, die für Modifizierungszwecke im allgemeinen im Kautschuk eingesetzt werden, leicht thermisch abgebaut.

Im Stande der Technik wurde Ethylen-Propylen-Kautschuk zu Polyolefinen, wie Polyethylen oder Polypropylen, Polyesterharzen, wie Polytetramethylenterephthalat oder Polyethylenterephthalat und anderen thermoplastischen Harzen hinzugegeben, um die hohe Schlagfestigkeit dieser thermoplastischen Harze zu verbessern. Diese Harze wurden jedoch auch durch die Zugabe des Kautschuks nicht genügend verbessert, und die Schlagfestigkeit dieser Harze, insbesondere die Schlagfestigkeit bei tiefen Temperaturen und andere Eigenschaften, wie die Wärmeverformungstemperatur dieser Harze sowie die Verträglichkeit des Kautschuks mit diesen Harzen waren schlecht.

In der vorliegenden Erfindung wurde festgestellt, daß bei Zugabe einer Cyanatester Verbindung mit mindestens einer Cyanatgruppe ( $-\text{OCN}$ ) zu Polyolefinen, wie Polyethylen oder Polypropylen, Polyester, wie Polytetramethylenterephthalat oder Polyethylenterephthalat, Polyamid und anderen thermoplastischen Harzen, die Stabilität dieser Harze verbessert werden konnte.

Weiter wurde im Rahmen der vorliegenden Erfindung festgestellt, daß bei Zugabe einer Cyanatester Verbindung mit mindestens einer Cyanatgruppe ( $-\text{OCN}$ ) zu Ethylen-Propylen-Kautschuk, die mechanischen Eigenschaften und die Eigenschaften des Kautschuks in der Wärme beträchtlich verbessert werden. Auch wird die Verträglichkeit mit dem Harz verbessert, wenn man Ethylen-Propylen-Kautschuk zusammen mit einer Verbindung mit mindestens einer Cyanatgruppe zu thermoplastischen Harzen hinzugibt, so daß die thermoplastischen Harze eine ausgezeichnete hohe Schlagfestigkeit aufweisen. Die vorliegende Erfindung beruht auf diesen Feststellungen.

Die vorliegende Erfindung betrifft zum einen eine Ethylen-Propylen-Kautschukmasse, die modifiziert ist durch Zugabe von 0,1—20 Gew.-%, bezogen auf das Gewicht der Masse, einer Cyanatester Verbindung (b) mit

mindestens einer Cyanatgruppe im Molekül zu einem Ethylen-Propylen-Kautschuk (a).

Gemäß einer bevorzugten Ausführungsform kann ein Comodifikator (c), der ausgewählt ist aus

- (i) einem Katalysator zum Vernetzen des Kautschuks (a)
  - (ii) einem Katalysator zum Härten der Cyanatesterverbindung (b),
  - (iii) einer monofunktionellen oder polyfunktionellen Maleimid-Verbindung in einer Menge von 0,1 — 5 Gew.-%, bezogen auf das Gewicht der Kautschukmasse, und
  - (iv) einem verstärkenden Material
- zu der Masse hinzugegeben werden.

Die Erfindung bezieht sich zum anderen auf eine schlagfeste thermoplastische Harzmasse mit

- (A) 95 — 70 Gew.-% eines thermoplastischen Harzes und
- (B) 5 — 30 Gew.-% eines die Schlagfestigkeit modifizierenden Zusatzes, der 95 — 70 Gew.-% eines Ethylen-Propylen-Kautschuks (a) und 5 — 30 Gew.-% einer Cyanatesterverbindung mit mindestens einer Cyanatgruppe im Molekül enthält.

Gemäß einer bevorzugten Ausführungsform ist das thermoplastische Harz (A) ein Polyolefin oder Polyester und der die Schlagfestigkeit modifizierende Zusatz ist ein vorläufiges Reaktionsprodukt von Ethylen-Propylen-Kautschuk (a) und Cyanatesterverbindung (b) und ein Comodifikator ist ausgewählt aus

- (i) einer katalytischen Menge eines Katalysators zum Vernetzen des Ethylen-Propylen-Kautschuks (a)
- (ii) einer katalytischen Menge eines Katalysators zum Härten der Cyanatesterverbindung (b),
- (iii) einer polyfunktionellen oder monofunktionellen Maleimidverbindung in einer Menge von weniger als 30 Gew.-%, bezogen auf das Gewicht der Cyanatesterverbindung (b), und
- (iv) einem verstärkenden Material.

Als nächstes werden modifizierte Ethylen-Propylen-Kautschukmassen (im folgenden abgekürzt als modifiziertes EPR bezeichnet) näher erläutert:

Ethylen-Propylen-Kautschuk (EPR) nach der vorliegenden Erfindung wird hergestellt durch Copolymerisieren von Ethylen, Propylen oder einer Mischung mit Ethylen, Norbornen, Dicyclopentadien und ähnlichem. Beispiele von EPR schließen Ethylen-Propylen-Copolymer (EPM) und Ethylen, Propylen und Dien-Copolymer (EPDM) ein.

Cyanatesterverbindungen mit mindestens einer Cyanatgruppe im Molekül, die als modifizierte Zusätze eingesetzt werden, sind durch die folgende Formel dargestellt:



....(1)

worin  $m$  eine ganze Zahl von mindestens 1 und vorzugsweise nicht mehr als 5 ist, R ist eine aromatisch-organische Gruppe, und die Cyanatgruppe oder -gruppen sind an den aromatischen Ring der organischen Gruppe gebunden.

Beispiele der Cyanatesterverbindungen schließen Alkylcyanatbenzole, wie Monocyanatbenzol und p-tert.-Butylcyanatbenzol, Monocyanatnaphthalin, 1,3- oder 1,4-Dicyanatbenzol, 1,3,5-Tricyanatbenzol, 1,3-, 1,4-, 1,6-, 1,8-, 2,6- oder 2,7-Dicyanatnaphthalin, 1,3,6-Tricyanatnaphthalin, 4,4'-Dicyanatbiphenyl, Bis(4-dicyanatphenyl)methan, 2,2-Bis(4-cyanatphenyl)propan, 2,2-Bis(3,5-dichlor-4-cyanatphenyl)propan, 2,2-Bis(3,5-dibrom-4-cyanatphenyl)propan, Bis(4-cyanatphenyl)ether, Bis(4-cyanatphenyl)thioether, Bis(4-cyanatphenyl)sulfon, Tris(4-cyanatphenyl)phosphat und Cyanatester ein, die erhalten sind durch Umsetzen eines Hydroxyendgruppen aufweisenden Polycarbonatoligomers mit einem Cyanogenhalogenid (US-PS 40 26 913) sowie Cyanatester, die erhalten sind durch Umsetzen von Novolak mit einem Cyanogenhalogenid (US-PSn 40 22 755 und 34 48 079). Die anderen Cyanatesterverbindungen sind in den JP-PSn 1 928/1966, 18 468/1968, 4 791/1969, 11 712/1970, 41 112/1971 und 26 853/1972, der JP-AS 64 149/1976 und den US-PSn 35 53 244, 37 55 403, 37 40 348, 35 95 900, 36 94 410 und 41 16 946 beschrieben, auf die hiermit Bezug genommen wird.

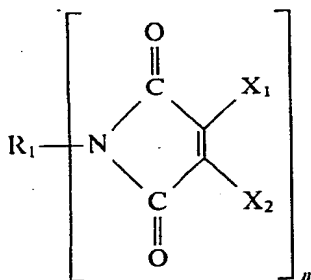
Die obigen polyfunktionellen Cyanatester können als solche oder als Prepolymer mit einer oder mehreren Cyanatgruppen im Molekül, erhalten durch Polymerisieren der obigen polyfunktionellen Cyanatester in Gegenwart oder Abwesenheit einer Mineralsäure, Lewissäure, eines Salzes, wie Natriumcarbonat oder Lithiumchlorid, eines Phosphates, wie Tributylphosphin oder eines organischen Metallsalzes bei erhöhter Temperatur erhalten werden oder durch eine vorherige Umsetzung der obigen polyfunktionellen Cyanatester mit einem monofunktionellen oder polyfunktionellen Maleimid, wie im folgenden noch näher erläutert wird.

Der Comodifikator ist ausgewählt aus

- (i) einem Katalysator zum Vernetzen des Ethylen-Propylen-Kautschuks,
- (ii) einem Katalysator zum Härten der Cyanatesterverbindung und
- (iii) einer monofunktionellen oder polyfunktionellen Maleimidverbindung in einer Menge von 0,1 — 5 Gew.-%, bezogen auf das Gewicht der Kautschukmasse.

Die Katalysatoren zum Vernetzen des Ethylen-Propylen-Kautschuks oder die Katalysatoren zum Polymerisieren der Cyanatesterverbindung sind Verbindungen, die zum Fördern der Umsetzung oder Vernetzung des Cyanatesters oder von EPR bekannt sind. Beispiele der Katalysatoren schließen organische Peroxide, wie Dicumylperoxid, Schwefelverbindungen, wie Schwefel, 2-Mercaptobenzimidazol; Melamin und Metallsalze oder Metallchelate ein, wie Aluminiumcetylacetonat.

Das bevorzugte monofunktionelle oder polyfunktionelle Maleimid wird durch die folgende allgemeine Formel wiedergegeben:



(2)

worin  $R_1$  für eine aromatische oder alicyclische organische Gruppe mit einer Wertigkeit von mindestens 1 steht, vorzugsweise einer Wertigkeit von nicht mehr als 5, und  $X_1$  und  $X_2$  sind unabhängig Wasserstoff, Halogen oder Alkyl und  $n$  ist eine ganze Zahl von allgemein 1 bis 5.

Die obigen Maleimidverbindungen können hergestellt werden durch Umsetzen von Maleinsäureanhydrid mit einem Polyamin mit 1 bis 5 Aminogruppen unter Bildung von Maleamidsäure, gefolgt von der Dehydratationscyclisierung der Maleamidsäure. Beispiele der Maleimide schließen ein: N-Phenylmaleimid, N-Carboxyphenylmaleimid, N-Chlorphenylmaleimid, N-Methoxyphenylmaleimid, 1,3- oder 1,4-Bismaleimidobenzol, 1,3- oder 1,4-Bismaleimidocyclohexan, 4,4'-Bismaleimidobiphenyl, Bis(4-maleimidophenyl)methan, Bis(4-maleimidophenyl)ether, Bis(4-maleimidophenyl)sulfon, Bis(4-maleimido-3-methylphenyl)methan, Bis(4-maleimido-3,5-dimethylphenyl)methan, Bis(4-maleimido-3,5-dichlorphenyl)methan, 2,2-Bis(4-maleimidophenyl)propan, 2,2-Bis(4-maleimido-3-methylphenyl)propan, 2,2-Bis(4-maleimido-3,5-dimethylphenyl)propan, 2,2-Bis(4-maleimido-3-chlorphenyl)propan, 2,2-Bis(4-maleimido-3,5-dichlorphenyl)propan, 2,2-Bis(4-maleimido-3,5-dibromphenyl)propan, 1,1-Bis(4-maleimidophenyl)cyclohexan, 3,4-Bismaleimidophenyl-4'-maleimidophenylmethan, 1,1-Bis(4-maleimidophenyl)-1-phenylmethan, Polymaleimide, die abgeleitet sind von Melaminen, die einen S-Triazinring aufweisen sowie Polymaleimid, bei dem die beiden Benzolringe durch eine Methylengruppe miteinander verbunden sind und das erhaltlich ist durch Umsetzen von Anilin mit Formaldehyd.

Verstärkende Materialien in einer Menge von 5–40 Gew.-% können zu dem modifizierten EPR hinzugegeben werden. Die verstärkenden Materialien können im Bereich von schwach alkalischen bis zu schwach sauren Materialien liegen, wie Glasfaser. Beispiele der verstärkenden Materialien schließen Glasfaser, Siliciumdioxid, Talk, Glimmer, Wollastonit und Calciumcarbonat ein. Ist das verstärkende Material schwach alkalisch oder schwach sauer, wird es vorzugsweise vorher mit einem bekannten Oberflächenbehandlungsmittel oder Cyanatesterverbindung behandelt.

Die modifizierte EPR-Masse nach der vorliegenden Erfindung kann hergestellt werden aus der Komponente (a), der Komponente (b) und gegebenenfalls dem Comodifikator (c) und anderen Zusätzen. Die Cyanatesterverbindung kann in einer Menge von 0,1–20 Gew.-%, vorzugsweise 1–20 Gew.-%, bezogen auf das Gewicht von EPR, eingesetzt werden. Der Einsatz der Cyanatesterverbindung in einer Menge von weniger als 0,1% verbessert die Haftungseigenschaften und die anderen Eigenschaften des EPR nicht. Obwohl der Einsatz der Cyanatesterverbindung in einer Menge von mehr als 20% die thermische Stabilität von EPR verbessert, beeinträchtigt es dessen Dehnung.

Der Katalysator zum Vernetzen des Kautschuks (a) und der Katalysator zum Härten der Cyanatesterverbindung kann in einer katalytischen Menge eingesetzt werden. Die Menge kann im Bereich von 0,05–5 Gew.-% liegen.

Der Einsatz des Katalysators in einer Menge von weniger als 0,05% fördert die Umsetzung nicht ausreichend. Der Einsatz von zu viel Katalysator kann eine nachteilige Wirkung haben.

Das monofunktionelle oder polyfunktionelle Maleimid kann in einer Menge von 0,1–5 Gew.-%, vorzugsweise 0,1–3 Gew.-%, bezogen auf das Gewicht von EPR eingesetzt werden. Der Einsatz von Maleimid in einer Menge von weniger als 0,1% verbessert die Eigenschaften von EPR nicht ausreichend. Obwohl der Einsatz von Maleimid in einer Menge von mehr als 5 Gew.-% die thermische Beständigkeit von EPR verbessert, beeinträchtigt es dessen Dehnung.

Zum Herstellen der EPR-Masse können Verfahren benutzt werden, mit denen man die Komponenten gleichmäßig vermischen kann. So können verwendet werden ein Verfahren zum Vermengen der Komponenten mit einem Mischer, Knetter, Henschel-Mischer oder anderen bekannten Einrichtungen, gefolgt vom Strangpressen mit einem Extruder; ein Verfahren zum Vermengen der Komponenten mit einem Knetter, Extruder oder Henschel-Mischer bei 20 bis 180°C; ein Verfahren zum Vermengen der Komponenten unter Einsatz eines anorganischen Füllstoffes, einer metallischen Komponente, einem Metalloxid, einem Pigment und anderen Zusätzen; und ein Verfahren zum Herstellen eines Masterbatch in einer hohen Konzentration, gefolgt von Vermischen des Masterbatch mit Harz. Beim Extrudieren der Komponentenmischung können übliche Strangpreßbedingungen angewendet werden. Polyethylen, Polypropylen oder ein anderes Harz oder Pulver von anorganischem Füllstoff, wie Glimmer, Siliciumdioxid, Wollastonit, Talk, Carbonat usw. können in einer geringen Menge zu der Mischung der Komponenten oder zu einer dieser Komponenten hinzugegeben werden, um die Handhabbarkeit des EPR zu verbessern.

Die modifizierte EPR-Masse nach der vorliegenden Erfindung kann in die Form einer Folie, eines Films, von Pellets, eines Stabes oder in andere Gestalten gebracht werden durch Preßformen, Strangpressen, Spritzformen usw.

Die modifizierte EPR kann in Xylol, Toluol oder anderen Lösungsmitteln gelöst werden, die das EPR zu lösen im Stande sind, wodurch man eine emulsionsartige Lösung erhält. Diese Lösung kann als Klebstoff, als Klebefilm

oder als Klebeschicht auf einem Träger benutzt werden.

Nach dem Vernetzen kann das modifizierte EPR nach der vorliegenden Erfindung für praktische Anwendungszwecke eingesetzt werden. Das geformte Harz als Platte, Folie, Film, Stab oder in ähnlicher Gestalt kann entweder während des Formens oder danach vernetzt werden. Wird das modifizierte EPR nach der vorliegenden Erfindung als Klebstoff, Klebefilm oder Klebeschicht auf einem Träger benutzt, ist es bevorzugt, das modifizierte EPR während der Herstellung einer Struktur zu vernetzen, indem man dem modifizierten EPR-Klebstoff benutzt. Das Vernetzen kann bei 80–300°C während einer Dauer von 30 Sekunden bis zu 3 Stunden erfolgen.

Das thermoplastische Harz mit einer verbesserten Schlagfestigkeit kann hergestellt werden durch Einarbeiten von 5–30 Gewichtsteilen EPR (a) und 5–30 Gewichtsteilen, bezogen auf (a), einer Cyanatester Verbindung (b) mit mindestens einer Cyanatgruppe im Molekül als die Schlagfestigkeit modifizierendem Zusatz (B) in 95–70 Gew.-% eines thermoplastischen Harzes (A).

Die Einzelheiten des thermoplastischen Harzes (A) sind nicht kritisch. Im Hinblick auf die Verbesserung der Schlagfestigkeit sind Polyolefine oder Polyester bevorzugt. Polycarbonat, modifiziertes oder nicht modifiziertes Polyphenylenetherharz, styrolartige Copolymere, wie PS, AS, ABS oder MBS, fluorierte Harze oder andere Elastomere können zu Polyolefinen oder Polyestern hinzugegeben werden.

Beispiele von Polyolefinen (PO) schließen Polyethylen (PE), Polypropylen (PP), Polybuten-1, Ethylen-Propylen-Copolymer und deren Mischungen ein. Polyester (PES) werden erhalten durch Kondensieren eines Diols, wie Ethylenglycol, Ethylenoxid, 1,4-Butandiol oder 1,4-Cyclohexandimethanol mit einer aromatischen Dicarbonsäure, wie Polyethylenterephthalat (PET) oder Polytetramethylenterephthalat (PBT) als Hauptkomponenten. Andere regellose oder Block-Copolyester können ebenfalls als Polyesterharz benutzt werden.

Der die Schlagfestigkeit modifizierende Zusatz (B) umfaßt EPR (a), Cyanatester Verbindung (b) und gegebenenfalls die Verbindung (c) ausgewählt aus

(i) einem Katalysator zu Vernetzen des Kautschuks (a)

(ii) einem Katalysator zum Härten der Cyanatester Verbindung (b), und

(iii) einer polyfunktionellen oder monofunktionellen Maleimidverbindung in einer Menge von weniger als 30 Gew.-%, bezogen auf das Gewicht der Cyanatester Masse.

Das Verhältnis von (b) zu (a) kann im Bereich von 5–30 Gew.-% liegen. Die Komponente (B) (a) und die Komponente (B) (b) kann separat zu dem thermoplastischen Harz (A) hinzugegeben werden. Vom Standpunkt der leichten Handhabung ist es jedoch bevorzugt, daß das Vorreaktionsprodukt von (a) und (b) zu dem Harz (A) hinzugegeben wird. Die Bedingungen zum Herstellen des Vorreaktionsproduktes sind die gleichen wie für die Herstellung des modifizierten EPR.

Ein verstärkendes Material in einer Menge von 5–40 Gew.-% kann zu dem thermoplastischen Harz (A) hinzugegeben werden. Die verstärkenden Materialien können im Bereich von schwach alkalischem Material bis zu schwach saurem Material liegen. Beispiele der verstärkenden Materialien schließen Glasfaser, Siliciumdioxid, Talk, Glimmer, Wollastonit und Calciumcarbonat ein. Sind die verstärkenden Materialien schwach alkalisch oder schwach sauer, ist es bevorzugt, sie vorher mit einem Oberflächenbehandlungsmittel oder einer Cyanatester Verbindung zu behandeln.

Thermoplastisches Harz (A) und die Schlagfestigkeit modifizierende Zusatz (B) können nach irgendeinem Verfahren vermengt werden, mit dem man sie gleichförmig vermischen kann. Ist das Harz (A), PE oder PP, dann kann das Vermengen bei 140–220°C erfolgen; ist das Harz (A), PBT oder PET, dann kann das Vermengen bei 220–280°C erfolgen. Das Vermengen kann während einer Dauer von 1 Minute bis zu 1 Stunde unter Einsatz einer Walze, eines Kneters, Extruders oder einer anderen Einrichtung erfolgen.

Andere Zusätze, wie ein Farbstoff, ein Pigment, ein Weichmacher, ein selbstverlöschendes Mittel, ein UV-Absorber, ein Stabilisator, andere anorganische Füllstoffe, Metallfasern, Metallpulver, Metallspäne und/oder ein wärmehärtbares Harz können zu dem thermoplastischen Harz nach der vorliegenden Erfindung hinzugesetzt werden.

Die vorliegende Erfindung wird im folgenden anhand von Ausführungsbeispielen und Kontrollversuchen weiter erläutert.

In diesen Beispielen und Kontrollversuchen sind alle angegebenen Prozentsätze und Teile auf das Gewicht bezogen, sofern nichts anderes angegeben.

Die in den Beispielen und Kontrollversuchen eingesetzten Komponenten sind mit den folgenden Symbolen bezeichnet:

#### EPR (a)

EP-11 ... EPM (EPR), Japan Synthetic Rubber Co., Ltd.; Ethylengehalt: 50%; Mooney-Viskosität: 40 (ML 1–4, 100°C); spezifisches Gewicht: 0,858; Glasübergangstemperatur (Tg): –60°C; Schmelzindex (MI): 0,8 g (190°C, 2,16 kg und 10 min).

EP-57P ... EPDM (EPR) Mitsubishi Petrochemical Co., Ltd.; Ethylengehalt: 75%; Mooney-Viskosität: 90 (ML 1–4, 100°C); spezifisches Gewicht: 0,875; Jodzahl: 15; Tg: –45°C; MI: 0,2 g (190°C, 2,16 kg und 10 min).

EP-912P ... EPM (EPR), Japan Synthetic Rubber Co., Ltd.; Propylengehalt: 26%.

#### Cyanatester Verbindung (b)

BPA-CN: 2,2-Bis(4-cyanatphenyl)propan

HQ-CN: 1,4-Dicyanatbenzol

BPCN28: Prepolymer mit einem Molekulargewicht von 2800, erhalten durch Vorpolymerisieren von BPA-CN in

der Wärme,

BT1030: Prepolymer mit einem Molekulargewicht von 3000, erhalten durch Vorpolymerisieren von 90 Teilen BPA-CN und 10 Teilen BMI in der Wärme.

BT1026: Vopolymer mit einem Molekulargewicht von 2600 erhalten durch Vorpolymerisieren von 90 Teilen 1,3-Dicyanatbenzol und 10 Teilen BMI in der Wärme.

#### Comidifikator (c)

BMI: Bis(4-maleidophenyl)methan

DCPO: Dicumylperoxid

ACFe: Eisenacetylacetonat

ACAl: Aluminiumcetylacetonat

BHT: 2,6-Di-tert.-butyl-p-methylphenol

BI-SH: 2-Mercaptobenzimidazol

#### Verstärkendes Material

CSX-03-3167: Nippon Glass Fiber Co., Ltd.; geschnittene Glasfaser mit einer Länge von 3 mm

CSX-03-4050: Nippon Glass Fiber Co., Ltd.; geschnittene Glasfaser mit einer Länge von 3 mm

#### Thermoplastisches Harz (A)

K1016: Polypropylenharz, Tisso Co., Ltd., Dichte: 0,90 g/cm<sup>3</sup>; Schmelzfließgeschwindigkeit (MFR): 5 g (230°C, 2,16 kg und 10 min)

K1800: Polypropylenharz, Tisso Co., Ltd.; Dichte: 0,90 g/cm<sup>3</sup>; MFR: 20 g (230°C, 2,16 kg u. 10 min),

6200 B: hochdichtes PE, Showa Denko K.K.,

PBT 1401: PBT-Harz, Toray Industries Inc., 1401 (Handelsname),

PBT 310: PBT-Harz, Engineering Plastics Co., Ltd.; Valox 310 (Handelsname); spezifisches Gewicht: 1,31,

MA500: PET-Harz, Mitsubishi Rayon Co., Ltd.; Dyanite MA500 (Handelsname); spezifisches Gewicht: 1,34;

Grenzviskosität (IV-Wert): 0,73; Schmelzpunkt: 255°C.

#### Physikalische Eigenschaften

$\delta_T$ : Zugfestigkeit beim Bruch (kg/mm<sup>2</sup>),

$\epsilon$ : Dehnung beim Bruch (%),

$\delta_{S^{90}}$ : Abziehfestigkeit im Winkel von 90° (kg/cm),

$\delta_{S^{180}}$ : Abziehfestigkeit im Winkel von 180° (kg/cm),

I.Z.: Kerschlagzähigkeit nach Izot (Kerbe 3 mm) (kg cm/cm),

HDT(18,6): Wärmeverformungstemperatur, Belastung 18,6 kg/cm<sup>2</sup> (°C),

HDT(4,6): Wärmeverformungstemperatur, Belastung 4,6 kg/cm<sup>2</sup> (°C)

$\delta_F$ : Biegefestigkeit (kg/mm<sup>2</sup>),

$Y_F$ : Biege-E-Modul (kg/mm<sup>2</sup>).

#### Beispiele 1 — 4 und Kontrollversuche 1 und 2 (modifizierte EPR-Masse)

Zu 100 Teilen EP-11 wurden 50 Teile Calciumcarbonat, 10 Teile Verarbeitungsöl (Idemitsu Petroleum Chemical Co., Ltd., NS-24 (Handelsname), 5 Teile Zinkoxid, 0,3 Teile Schwefel (Vernetzungskatalysator), 2,7 Teile DCPO (Vernetzungskatalysator) und Stearinsäure oder Calciumstearat (Schmiermittel) sowie BPA-CN oder 2-Mercaptobenzthiazol (Modifizierungsmittel) in den in Tabelle 1 angegebenen Mengen hinzugegeben. Die erhaltenen Mischungen wurden bei Zimmertemperatur 20 Minuten auf der Walze gemischt, die Mischungen 30 Minuten bei 160°C zu Folien von 1 mm Dicke gepreßt.

Die Zugfestigkeit und die Dehnung beim Bruch der Folien im Normalzustand (A) und nach 50-stündigem Erhitzen auf 100°C (D-50/100) wurden gemessen. Die Ergebnisse sind in Tabelle 1 zusammengefaßt.



Tabelle 1

		Kontroll- versuch 1	Beispiel 1	Beispiel 2	Beispiel 3	Beispiel 4	Kontroll- versuch 1
Schmiermittel (Teile)	Stearinsäure Calciumstearat	0.6		0.6	0.1	0.6	0.1
Modifikator (Teile)	BPA-CN 2-Mercaptobenzthiazol		2.0	3.0	2.0	2.0	2.0
$\sigma_T$ (kg/mm <sup>2</sup> )	A D-50/100	0.22 0.29	0.31 0.35	0.32 0.40	0.28 0.35	0.28 0.31	0.23 0.29
$\epsilon$ (%)	A D-50/100	460 590	700 700	720 710	610 640	600 610	530 580

Die Folie des Beispiels 1 und die Folien der Kontrollversuche 1 und 2 wurden zwischen Kupferfolien von 70 µm Dicke geklemmt und aufgewickelt. Man erhitze sie für 24 Stunden in einem Ofen. Danach beobachtete man das Aussehen der Oberflächen der Folien, die mit Kupfer in Berührung standen, mit dem Auge. Die Ergebnisse sind in der Tabelle 2 zusammengefaßt.

Tabelle 2

Aussehen	
Kontrollversuch 1	deutliche Verfärbung und Abbau
Beispiel 1	keine Veränderung
Kontrollversuch 2	deutliche Verfärbung und Abbau

#### Beispiele 5 und 6 und Kontrollversuche 3 und 4 (modifizierte EPR-Masse)

Zu 100 Teilen EP-11 wurden 50 Teile Ton, 10 Teile Verarbeitungsöl (NS-24), 5 Teile Zinkoxid, 0,3 Teile Schwefel, 2,7 Teile DCPO, 0,3 Teile Stearinsäure sowie HQ-CN und BHT in den in Tabelle 3 angegebenen Mengen hinzugegeben. Die Mischung wurde 20 Minuten bei Zimmertemperatur auf der Walze gemischt. Die Mischungen wurden 30 Minuten bei 160°C zu Folien von 1 mm Dicke gepreßt.

Die Zugfestigkeit und die Dehnung beim Bruch der Folien im Normalzustand (A) wurden gemessen. Danach tauchte man die Folien für 2 Tage in Xylol ein und bestimmte die Gewichtszunahme in Prozent.

Tabelle 3

		Kontrollversuch 3	Kontrollversuch 4	Beispiel 5	Beispiel 6
Modifikator (Teile)	HQ-CN BHT		2,0	2,0	4,0
$\sigma_T$ (kg/mm <sup>2</sup> )		Messung war unmöglich	wie links	13,8	15,2
$\epsilon$ (%)		mehr als 1000	wie links	980	920
Gewichtszunahme (%)		Auflösung	wie links	750	700

#### Beispiele 7 bis 11 und Kontrollversuch 5 (modifizierte EPR-Masse)

Zu 100 Teilen EP-11 wurden 50 Teile Calciumcarbonat, 10 Teile Verarbeitungsöl (NS-24), 5 Teile Zinkoxid, 3 Teile Schwefel, 2,7 Teile DCPO, 0,25 Teile Zinkstearat sowie BPA-CN, BPCN28 beziehungsweise BT1030 in den in Tabelle 4 angegebenen Mengen hinzugegeben. Die Mischungen wurden 5 Minuten bei 80°C auf der Walze vermengt. Dann preßte man die Mischungen 30 Minuten bei 160°C zu Folien von 1 mm Dicke. Die Testergebnisse sind in Tabelle 4 gezeigt.

Tabelle 4

		Kontrollversuch 5	Beispiel 7	Beispiel 8	Beispiel 9	Beispiel 10	Beispiel 11
Modifikator (Teile)	BPA-CN BPCN28 BT1030		2.5	2.5	5.0	5.0	10.0
$\sigma_T$	(kg/mm <sup>2</sup> )	0.21	0.32	0.26	0.24	0.26	0.32
$\epsilon$	(%)	470	705	700	690	490	480
$\sigma_T$	(kg/mm <sup>2</sup> , = 100%)	0.054	0.079	0.076	0.102	0.132	0.128
$\sigma_I$	(kg/mm <sup>2</sup> , = 300%)	0.095	0.12	0.104	0.154	0.251	0.233

Beispiele 12 bis 17 und Kontrollversuche 7 bis 9 (modifizierte EPR-Masse)

Zu 100 Teilen EP-11 wurden 1,0 Teile DCPO sowie BPA-CN, ACFe oder ein Bisphenol-A-Epoxyharz (EPA5) mit einem Epoxyäquivalent von 450 bis 500 in den in Tabelle 5 angegebenen Mengen hinzugegeben. Die Mischungen wurden bei Zimmertemperatur 10 Minuten auf der Walze vermenzt. Dann ordnete man die Mischungen sandwichartig zwischen Fluorharzfilmen an und preßte sie zu Filmen von 35 µm Dicke.

Die erhaltenen Filme wurden zwischen PET-Filmen von 50 µm Dicke angeordnet und die erhaltenen Laminat wurden für 10 oder 60 Minuten bei 170°C und 20 kg/cm<sup>2</sup> gepreßt, um Filme (PET/10 min) und Filme (PET/60 min) zu erhalten. In ähnlicher Weise wurden die erhaltenen Filme zwischen Kupferfolien von 35 µm Dicke angeordnet, so daß die polierte Seite der Folien mit dem Film in Berührung stand. Die entsprechenden Laminat wurden für 30 Minuten bei 160°C und 20 kg/cm<sup>2</sup> zu Filmen (Cu/30 min) gepreßt. Die Testergebnisse sind in der Tabelle 5 zusammengefaßt.

Tabelle 5

		Kontr.- vers. 7	Kontr.- vers. 8	Kontr.- vers. 9	Beispiel 12	Beispiel 13	Beispiel 14	Beispiel 15	Beispiel 16	Beispiel 17
Modifi- kator (Teile)	BPA-CN ACFe EPA5		0.10	0.01 10	1.0	1.0 0.001	5.0	5.0 0.005	10.0	10.0 0.01
$\sigma_{90}$	PET/10 min.	0	0	0	0.2	0.3	0.6	0.8	1.1	1.2
(kg/cm)	PET/60 min.	0	0	0	0.2	0.5	0.8	1.0	1.2	1.2
	Cu/30 min.	0	0	0	0.3	0.7	1.0	1.2	1.8	1.8

Beispiele 18 bis 24 und Kontrollversuche 10 bis 12 (modifizierte EPR-Masse)

Zu 100 Teilen EP-11 (Beispiele 18 bis 24 und Kontrollversuche 10 und 11) oder 100 Teilen Polyethylen geringer Dichte (Kontrollversuch 12) wurden 1 Teil DCPO sowie BPA-CN, BPCN28, BT1030, BMI oder Harz in den in Tabelle 6 angegebenen Mengen hinzugegeben. Die erhaltenen Mischungen wurden 10 Minuten bei 80°C auf der Walze gemischt. Die Mischungen wurden dann sandwichartig zwischen fluorierten Filmen angeordnet und gepreßt, um 100 µm dicke Filme zu bilden.

Die erhaltenen Filme wurden zwischen PET-Filmen von 100 µm Dicke angeordnet und 30 Minuten bei 160°C einem Druck von 20 kg/cm<sup>2</sup> ausgesetzt, um Folien zu bilden (die nachfolgend als PET/ bezeichnet sind). In ähnlicher Weise wurden die erhaltenen Filme zwischen Aluminiumfolien von 50 µm Dicke angeordnet, wobei die polierte Seite der Folien mit dem Film in Berührung stand und unter 20 kg/cm<sup>2</sup> bei 160°C gepreßt, um Folien zu ergeben (die nachfolgend als A1/ bezeichnet sind). Die Testergebnisse sind in der Tabelle 6 zusammengefaßt.

Tabelle 6

		Kontr.- vers. 10	Kontr.- vers. 11	Beispiel 18	Beispiel 19	Beispiel 20	Beispiel 21	Beispiel 22	Beispiel 23	Beispiel 24	Kontr.- vers. 12
Modifi- kator (Teile)	BPA-CN BPCN28 BT1030 BMI Colophonium			10.0	4.0	10.0	4.0	10.0	15.0	13.5	10.0
$\sigma_{180}$	PET/	0.6	0.2	1.2	1.3	1.4	2.8	3.0	2.4	2.4	0.4
(kg/cm)	A1/	0.6	0.3	2.0	2.2	2.3	6.3	8.4	6.5	6.5	0.5

Zu der Mischung von Beispiel 22 wurde Xylol hinzugegeben. Die erhaltene Mischung wurde 6 Stunden bei 70°C gerührt, wobei man eine leicht braune Emulsion mit einem Feststoffgehalt von 9% erhielt. Diese Emulsion wurde auf eine Kupferfolie von 35 µm Dicke aufgebracht und dann wurde die mit Emulsion überzogene Kupferfolie 15 Minuten bei 130°C in einem Ofen getrocknet, um eine 35 µm dicke, mit Klebstoff überzogene Kupferfolie zu ergeben.

Die Folie wurde auf einem 50 µm dicken PET-Film angeordnet, so daß die Klebstoffseite der Folie mit dem Film in Berührung stand. Das Laminat wurde 30 Minuten bei 170°C mit einem Druck von 20 kg/cm<sup>2</sup> gepreßt, um einen kupferkaschierten PET-Film zu ergeben. Die Abziehfestigkeit der Kupferfolie des Films betrug 2,8 kg/cm. Durch 2-minütiges Anordnen des Films auf einem Lötmittel, das auf 225°C erhitzt war, trat keine Blasenbildung des Filmes auf.

### Thermoplastische Harze mit verbesserter Schlagfestigkeit

#### Beispiele 25 bis 38 und Kontrollversuche 13 bis 18 (P.P. vorheriges Vermengen)

Die in Tabelle 7 angegebenen Komponenten wurden auf der Walze 10 Minuten bei 80°C vermischt, um modifizierte EPR-Massen zu ergeben. Die erhaltenen Massen und PP-Harz wurden mittels eines Kneters 15 Minuten bei 185°C vermischt. Die Mischungen wurden bei 185°C und 20 kg/cm<sup>2</sup> zu Folien von 3 mm Dicke gepreßt. Die Testergebnisse sind in Tabelle 7 gezeigt.

Tabelle 7-(1)

		Kontr.- vers. 13	Kontr.- vers. 14	Kontr.- vers. 15	Beispiel 25	Beispiel 26	Beispiel 27	Beispiel 28	Beispiel 29	Beispiel 30	Beispiel 31
K1016	(Teile)	100	80	80	80	80	80	80	80	80	90
EP-11			20	20	20	20	20	20	20	20	10
vorver- mischter	BPA-CN				2	2			2		
Modifi- kator	BMI					0.2					
(Teile)	BT1030						2.2	2.2		2.2	1.1
	Melamin			0.02				0.02		0.02	0.02
	DCPO			0.1					0.1	0.1	
I.Z.	23°C	2.3	14.5	8.3	15.2	17.0	19.8	18.6	17.1	17.0	6.0
	-40°C	1.5	3.5	4.0	4.0	4.0	4.0	4.6	4.7	5.7	3.0
HDT (18.6) (°C)		58	48	48	50	51	51	51	50	49	51
$\sigma_F$	(kg/mm <sup>2</sup> )	4.3								2.8	
$Y_F$	(kg/mm <sup>2</sup> )	141								97	

Tabelle 7-(2)

		Beispiel 32	Beispiel 33	Beispiel 34	Beispiel 35	Beispiel 36	Kontr.- vers. 16	Kontr.- vers. 17	Kontr.- vers. 18	Beispiel 37	Beispiel 38
K1016	(Teile)	70	80	80	80	80	80	80	70	80	70
EP-11		30	20	20	20	20	20	20	30	20	30
vorver- mischter	BPA-CN										
Modifi- kator	BMI										
(Teile)	BT1030	3.3	1.0	2.0	4.0	6.0				2.0	3.0
	Melamin	0.03	0.1	0.1	0.1	0.1		0.1		0.1	0.1
	DCPO		0.1	0.1	0.1	0.1		0.1		0.1	0.1
CSX-03-3167							50	50	50	50	50
I.Z.	23°C	62.7	17.4	25.4	20.5	15.2	10.3	4.5	12.6	16.6	26.8
	-40°C	7.2	6.1	7.2	5.8	6.0	3.0	4.0	4.0	10.1	10.5
HDT (18.6) (°C)		43	51	49	53	44	62	95	55	95	62
$\sigma_F$	(kg/mm <sup>2</sup> )			2.7			2.7			6.0	
$Y_F$	(kg/mm <sup>2</sup> )			100			194			291	

#### Beispiele 39 bis 42 (PP vorheriges Vermischen)

Die in Tabelle 8 angegebenen Komponenten wurden 10 Minuten bei 100°C auf der Walze vermischt, um modifizierte EPR-Massen zu ergeben. Die erhaltenen Massen und PP-Harz wurden 15 Minuten bei 185°C in einem Kneter vermischt. Die erhaltenen Mischungen wurden bei 185°C und 20 kg/cm<sup>2</sup> zu Folien von 3 mm Dicke gepreßt. Die Testergebnisse sind in Tabelle 8 gezeigt.

Tabelle 8

		Beispiel 39	Beispiel 40	Beispiel 41	Beispiel 42
K1800 EP-57P	(Teile)	80 20	80 20	80 20	80 20
vorvermischter Modifikator (Teile)	BT1026 Melamin DCPO ACAI	1 0.1 0.1	2 0.1 0.1	4 0.1 0.1	2 0.1 0.1
Hilfsmittel	BI-Sh	0.1	0.1	0.1	
I.Z.	23°C -40°C	53.0 6.8	55.5 6.5	51.0 6.5	50.3 6.0
HDT (18.6)	(°C)	50	47	49	49

Beispiele 43 bis 46 und Kontrollversuche 19 bis 21 (PE vorher vermischt)

Die in Tabelle 9 angegebenen Komponenten wurden 10 Minuten bei 80°C auf der Walze gemischt, um modifizierte EPR-Massen zu ergeben. Die erhaltenen Massen und PE-Harz wurden für 15 Minuten bei 155°C im Knetter vermischt. Die erhaltenen Mischungen preßte man bei 150°C und 20 kg/cm<sup>2</sup> zu 3 mm dicken Folien. Die Testergebnisse sind in Tabelle 9 gezeigt.

Tabelle 9

		Kontr.- vers. 19	Kontr.- vers. 20	Kontr.- vers. 21	Beispiel 43	Beispiel 44	Beispiel 45	Beispiel 46
6200V EP-11	(Teile)	100	80 20	80 20	80 20	80 20	80 20	80 20
vorver- mischter Modifikator (Teile)	BPA-CN BT1030 BMI Melamin DCPO			0.1 0.1	2 0.1 0.1	2 0.1 0.1	2 0.2 0.1 0.1	2.2 0.1 0.1
I.Z.	23°C -40°C	2.4 2.2	11.1 2.7	10.4 1.9	12.0 4.1	12.8 4.0	14.4 4.1	16.9 4.2
HDT (4.6)	(°C)	63	48	51	48	50	51	51
$\sigma_f$	(kg/mm <sup>2</sup> )	3.0	1.7	1.8	1.7	1.7	1.8	1.9
$Y_f$	(kg/mm <sup>2</sup> )	117	59	64	59	62	64	67

Beispiele 47 und 48 und Kontrollversuche 22 bis 24 (PE vorheriges Vermengen)

Die in Tabelle 10 angegebenen Komponenten wurden 10 Minuten bei 80°C auf der Walze vermischt, um modifizierte EPR-Massen zu ergeben. Die erhaltenen Massen und PE-Harz wurden 15 Minuten bei 155°C im Knetter vermengt. Die erhaltenen Mischungen preßte man bei 150°C und 20 kg/cm<sup>2</sup> zu 3 mm dicken Folien. Die Testergebnisse sind in Tabelle 10 gezeigt.

Tabelle 10

		Kontr.- vers. 22	Kontr.- vers. 23	Kontr.- vers. 24	Beispiel 47	Beispiel 48
6200V EP-912P	(Teile)	100	80 20	80 20	80 20	80 20
vorvermischter Modifikator (Teile)	BT1026 Melamin DCPO			0.1 0.1	2	2 0.1 0.1
CSX-03-3167		30	30	30	30	30
I.Z.	23°C	2.8	6.8	6.3	6.8	6.9
	-40°C	2.0	3.9	3.8	4.0	4.8
HDT (4.6)	(°C)	89	58	73	82	92
$\sigma_F$	(kg/mm <sup>2</sup> )	3.1	1.7	1.8	2.4	3.3
$Y_F$	(kg/mm <sup>2</sup> )	203	124	119	160	179

Beispiele 49 bis 53 und Kontrollversuche 25 bis 31 (PO, kein vorheriges Vermischen)

Zu PP-Harz wurden die in Tabelle 11 angegebenen Komponenten hinzugegeben. Die erhaltenen Mischungen wurden 30 Minuten bei 190°C im Knetter vermengt. Die Mischungen preßte man dann bei 190°C und 20 kg/cm<sup>2</sup> zu Platten von 3 mm Dicke. Die Testergebnisse sind in Tabelle 11 gezeigt.

Tabelle 11-(1)

		Kontr.- vers. 25	Kontr.- vers. 26	Kontr.- vers. 27	Beispiel 49	Beispiel 50	Beispiel 51
K1016 EP-912P	(Teile)	100	80 20	80 20	80 20	80 20	80 20
Modifizierungs- zusatz (Teile)	BPA-CN BT1030 BMI Melamin DCPO			0.1 0.1	2 0.1 0.1	2 0.2 0.1	2.2 0.1 0.1
I.Z.	23°C	2.3	10.1	6.7	13.2	14.3	14.9
	-40°C	1.4	3.8	3.5	4.4	4.7	5.0
HDT (18.6)	(°C)	58	48	48	50	50	49

Tabelle 11-(2)

		Kontr.- vers. 28	Kontr.- vers. 29	Kontr.- vers. 30	Beispiel 52	Kontr.- vers. 31	Beispiel 53
K1016 EP-912P	(Teile)	100	80 20	80 20	80 20	80 20	80 20
Modifizierungs- zusatz (Teile)	BPA-CN BT1030 BMI Melamin DCPO			0.1 0.1	2 0.1	2	2 0.1 0.1
CSX-03-3167		50	50	50	50	50	50
I.Z.	23°C	2.0	8.2	4.2	9.0	10.8	9.3
	-40°C	2.2	2.6	3.8	6.5	2.7	7.1
HDT (18.6)	(°C)	73	63	91	99	59	101
$\sigma_F$	(kg/mm <sup>2</sup> )	4.1	2.6	3.7	7.1	3.9	7.6
$Y_F$	(kg/mm <sup>2</sup> )	252	193	216	260	235	279

## Beispiele 54 bis 56 und Kontrollversuche 32 bis 36 (PO, kein vorheriges Vermischen)

Zu PE-Harz (6200V) wurden die in Tabelle 12 angegebenen Komponenten hinzugegeben. Die erhaltene Mischung wurde bei 150°C 30 Minuten im Kneter vermengt. Aus den Mischungen wurden bei 150°C und 20 kg/cm<sup>2</sup> 3 mm dicke Platten gepreßt. Die Testergebnisse sind in Tabelle 12 gezeigt.

Tabelle 12

		Kontr.- vers. 32	Kontr.- vers. 33	Kontr.- vers. 34	Beispiel 54	Beispiel 55	Kontr.- vers. 35	Kontr.- vers. 36	Beispiel 56
6200V EP-912P	(Teile)	100	80 20	80 20	80 20	80 20	100	80 20	80 20
Modifizie- rungszusatz (Teile)	BPA-CN BT1030 Melamin DCPO			0.1 0.1	2 0.1 0.1	2 0.1 0.1			2 0.1 0.1
CSX-03-3167							30	30	30
I.Z.	23°C	2.4	9.5	9.1	11.0	11.7	2.8	6.8	6.5
	-40°C	2.2	2.6	1.6	3.8	4.0	2.0	3.9	4.0
HDT (4.6)	(°C)	63	49	52	50	51	89	58	90
$\sigma_F$	(kg/mm <sup>2</sup> )	3.0	1.8	2.0	1.7	1.9	3.1	1.7	3.2
$Y_F$	(kg/mm <sup>2</sup> )	117	61	68	58	70	203	124	168

## Beispiele 57 bis 66 und Kontrollversuche 37 bis 40 (PES, vorheriges Vermengen)

Bei Verwendung von PBT 1401 wurden die in Tabelle 13 angegebenen Komponenten 10 Minuten bei 80°C auf der Walze vermischt. Bei Einsatz von MA 500 wurden die in der Tabelle 13 angegebenen Komponenten 15 Minuten bei 80°C auf der Walze vermischt.

PBT 1401 und die modifizierten EPR-Massen wurden 10 Minuten bei 235°C im Kneter vermengt. MA 500 und die modifizierten EPR-Massen wurden 15 Minuten bei 260°C im Kneter vermengt.

Bei Einsatz von PBT 1401 wurden PES-Harz und die modifizierten EPR-Masse vermischt und die Mischungen bei 230°C und 20 kg/cm<sup>2</sup> zu 3 mm dicken Platten gepreßt.

Bei Verwendung von MA 500 wurden PES-Harze und die modifizierte EPR-Masse vermischt und die Mischungen preßte man bei 260°C und 20 kg/cm<sup>2</sup> zu 3 mm dicken Platten. Die Testergebnisse sind in Tabelle 13 gezeigt.

Tabelle 13-(1)

		Kontr.- vers. 37	Kontr.- vers. 38	Beispiel 57	Beispiel 58	Beispiel 59	Beispiel 60	Beispiel 61
BPT1401 EP-11	(Teile)	100	80 20	80 20	80 20	80 20	80 20	80 20
vorvermischter Modifikator (Teile)	BPA-CN BPCN28 BT1030 Melamin DCPO			2	2	2	2 0.1 0.02	1
I.Z.	(23°C)	2.7	3.7	5.3	8.4	10,1	5.8	7.9
HDT (18.6)	(°C)	55	50	50	50	50	50	52
$\sigma_F$	(kg/mm <sup>2</sup> )	7.5	4.8			4.6		
$Y_F$	(kg/mm <sup>2</sup> )	233	157			151		

Tabelle 13-(2)

		Beispiel 62	Beispiel 63	Beispiel 64	Beispiel 65	Kontr.- vers. 39	Kontr.- vers. 40	Beispiel 66
BPT1401	(Teile)	80	80	70	90			
MA500						100	80	80
EP-11		20	20	30	10		20	20
vorvermischter Modifikator	BT1030 (Teile)	4	6	3	1			2
I.Z.	(23°C)	9.2	6.7	12.5	4.9	2.6	3.5	5.5
HDT (4.6)	(°C)					110	106	92
HDT (18.6)	(°C)	48	44	42	53	84	80	78
$\sigma_F$	(kg/mm <sup>2</sup> )					11.7	5.0	4.9
$Y_F$	(kg/mm <sup>2</sup> )					303	160	161

Beispiele 67 bis 69 und Kontrollversuche 41 und 42 (PES, vorheriges Vermischen)

Bei Einsatz von EP-57P wurden die in Tabelle 14 angegebenen Komponenten 10 Minuten bei 100°C auf der Walze vermischt. Bei Einsatz von EP-912P wurden die in Tabelle 14 angegebenen Komponenten 15 Minuten bei 80°C auf der Walze vermischt, wobei man Pellets herstellt.

PBT310 oder EP-57P und die modifizierten EPR-Massen wurden 15 Minuten bei 240°C im Knetter gemischt. PBT 1401 oder EP-912P und die modifizierten EPR-Massen wurden 15 Minuten bei 240°C im Knetter gemischt.

PES-Harz und die modifizierte EPR-Masse wurden vermischt und die erhaltenen Mischungen bei 230°C und 20 kg/cm<sup>2</sup> zu 3 mm dicken Platten gepreßt. Die Testergebnisse sind in Tabelle 14 zusammengefaßt.

Tabelle 14

		Kontr.- vers. 41	Kontr.- vers. 42	Beispiel 67	Beispiel 68	Beispiel 69
PBT 310	(Teile)	100	80	80		
PBT1401					80	80
EP-57P			20	20		
EP-912P					20	20
vorvermischter Modifikator (Teile)	BT1026			2		
	BT1030				2	2
Glasfaser	CSX-03-3163	30	30	30		
	CSX-03-4050					30
I.Z.	(23°C)	2.9	4.9	8.1	6.7	10.2
HDT (4.6)	(°C)				120	178
HDT (18.6)	(°C)	113	86	89	51	72
$\sigma_F$	(kg/mm <sup>2</sup> )	10.6	7.8	7.5	4.6	7.9
$Y_F$	(kg/mm <sup>2</sup> )	403	347	310	147	278

Beispiele 70 bis 75 und Kontrollversuche 43 bis 46 (PES, kein vorheriges Vermengen)

Zu PBT-Harz wurden die in Tabelle 15 aufgeführten Komponenten in der angegebenen Reihenfolge hinzugegeben. Die Mischungen wurden 30 Minuten bei 230°C im Knetter gemischt. Aus den erhaltenen Mischungen preßte man bei 230°C und 20 kg/cm<sup>2</sup> 3 mm dicke Platten. Die Testergebnisse sind in Tabelle 15 zusammengefaßt.

Tabelle 15

		Kontr.- vers. 43	Kontr.- vers. 44	Beispiel 70	Beispiel 71	Beispiel 72	Kontr.- vers. 45	Kontr.- vers. 46	Beispiel 73	Beispiel 74	Beispiel 75
PBT1401	(Teile)	100	80	80	80	80	100	80	80	80	80
PBT310											
EP-912P			20	20	20	20		20	20	20	20
Modifi- zierender Zusatz (Teile)	BPA-CN BPCN28 BT1030 BMI			2	2	2.2			2	2	2.2
CSX-03-3167							30	30	30	30	30
I.Z.	23°C	2.7	3.5	6.6	6.4	6.7	2.9	3.8	7.0	10.0	10.2
HDT(18.6)	(°C)	55	50	51	50	51	113	84	86	69	72
$\sigma_F$	(kg/mm <sup>2</sup> )	7.5	4.7	4.6	4.3	4.6	10.6	7.2	7.1	7.2	7.9
$Y_F$	(kg/mm <sup>2</sup> )	233	150	145	142	147	403	335	307	296	288

Beispiele 76 und 77 sowie Kontrollversuche 47 bis 50 (PES, kein vorheriges Vermengen)

Zu PET-Harz gab man die in der Tabelle 16 aufgeführten Komponenten in der angegebenen Reihenfolge hinzu. Die erhaltenen Mischungen wurden 30 Minuten bei 260°C im Knetter vermengt. Die fertigen Mischungen preßte man bei 260°C und 20 kg/cm<sup>2</sup> zu 3 mm dicken Platten. Die Testergebnisse sind in Tabelle 16 zusammengefaßt.

Tabelle 16

		Kontr.- vers. 47	Kontr.- vers. 48	Beispiel 76	Kontr.- vers. 49	Kontr.- vers. 50	Beispiel 77
MA500	(Teile)	100	80	80	100	80	80
EP-912P			20	20		20	20
Modifizierender Zusatz	BT1030 (Teile)			2.0			2.0
CSX-03-3167					30	30	30
I.Z.	(23°C)	2.6	5.0	8.2	3.4	5.6	6.9
HDT (4.6)	(°C)	110	92	88	175	150	147
$\sigma_F$	(kg/mm <sup>2</sup> )	11.7	5.7	5.0	11.7	7.9	6.4
$Y_F$	(kg/mm <sup>2</sup> )	303	170	149	491	334	300